

明細書

W32003012194 PCT/PTO 03 FEB 2006

中空糸膜サブモジュール及びそれを用いたモジュール

技術分野

本発明は選択透過性を有する中空糸膜からなる中空糸膜モジュールを構成する中空糸膜サブモジュールに関する。流体の膜分離処理に用いられ、例えば、海水の淡水化、かん水の脱塩、廃水の浄化、無菌水の製造、超純水の製造のような逆浸透法や、高度浄水処理や農薬、臭気物質、消毒副生成物前駆物質などの低分子有害物質の除去、硬度成分除去による軟水化処理などのナノろ過法や、電着塗装廃水からの塗料の回収、食品関係の有用物の濃縮・回収、凝集沈殿・砂ろ過代替の浄水処理などのような限外ろ過法や、天然ガスからのヘリウムの回収、アンモニアプラントのパージガスからの水素の分離・回収、石油の3次回収での炭酸ガスの分離、酸素富化、窒素富化などの気体分離などに用いることが可能な選択透過性を有する中空糸膜からなる中空糸膜モジュールに関するものである。特に海水の淡水化などの水処理に有効な逆浸透中空糸膜モジュールを構成する中空糸膜サブモジュールに関するものである。

背景技術

選択透過性膜は分離する物質のサイズによって種類が分けられている。例えば、液体処理用の膜の種類としては、コロイドや蛋白質等を分離する限外ろ過膜や精密ろ過膜、農薬等の低分子有機物を分離するナノろ過膜、及びイオン類を分離する逆浸透膜に大別される。逆浸透膜は処理すべき液体の浸透圧よりも高い圧力下で使用されるものであり海水淡水化の場合は数MPaの圧力で使用される。

一方、選択透過性膜の膜形状としては、平膜型、管状膜型、スパイラル膜型及び中空糸膜型が挙げられるが、中でも、中空糸膜型は膜モジュールの単位容積当たりの膜面積を大きくできるため、膜分離操作に適した形状であり、例えば、逆浸透膜による海水淡水化分野では広く用いられている。また、この中空糸膜モジュールは通常は圧力容器と中空糸膜エレメントお

よび複数の中空糸膜から流出する透過流体を集合する透過流体収集部材などの部材から構成される。特に、中空糸膜エレメントと上記透過流体収集部材とは密着していることが必要で、中空糸膜エレメントと透過流体収集部材が密着固定した状態となっているものを本発明においては中空糸膜サブモジュールと称している。

このような中空糸膜サブモジュールは一つの圧力容器に複数の中空糸膜エレメントの装着が必要な場合、特に、両端開口型の中空糸膜エレメントを複数本装着する場合に、複数の中空糸膜開口端部からの透過流体をモジュールから取り出しやすくなるため有効である。

10 このような、従来の中空糸膜サブモジュールは、構造の簡略さ、製造の容易さなどから、中空糸膜エレメントと透過流体収集部材が接着されて一体化している。例えば、特表平 9-511447 号公報には、中空糸膜の両端を開口させ、両端部の開口端部に透過流体収集部材（エンドキャップ）が一体化されている中空糸膜サブモジュール構造が開示されている。

15 しかしながら、上記中空糸膜サブモジュールは、中空糸膜エレメントと透過流体収集部材が接着等により一体化しているため、膜交換が必要な場合、中空糸膜サブモジュールごと交換しなければならない。従って、透過流体収集部材も交換、処分しなければならず、再利用ができないため、地球環境、経済面で好ましくない。また、透過流体収集部材が装脱着できないと、サブモジュールの性能評価後に性能に異常が判明した場合にも、中
20 空糸膜の開口面のリーク試験・観察や、修復が不可能であるという問題がある。また、大型の中空糸膜エレメントの場合は、透過流体収集部材またはエンドキャップを直接中空糸膜エレメントに取り付ける方式では、作業が困難である問題がある。さらに圧力容器に装着した場合に、供給流体または濃縮流体が圧力容器内面と中空糸膜サブモジュールの隙間を通過する
25 ための隙間を確保必要があり、そのため、中空糸膜エレメントの外径を小さくしなければならず、中空糸膜の膜面積の低下、透過流量の低下が生じるという問題がある。

一方、中空糸膜エレメントと透過流体収集部材がネジの締め付けで固定する方式が考えられる。これは、可逆的に装脱着が可能であるが、中空糸膜サブモジュールにポンプで供給流体を供給して膜処理運転した場合、ポンプの振動により運転中にネジ部が緩むことがあり好ましくない。また、

5 ネジ構造では、材質は金属が好ましいが、海水などを処理する場合、金属部が腐食するため好ましくない。

発明の開示

本発明は、使用中は透過流体収集部材が中空糸膜エレメントと密着しており、かつ、この透過流体収集部材が可逆的に装脱着可能であり、膜交換

10 時には中空糸膜エレメントを交換して、透過流体収集部材が再度、交換後の中空糸膜エレメントに装着、利用が可能な中空糸膜サブモジュールを提供することを課題とする。

上記課題に鑑み鋭意研究の結果、本発明者らは、中空糸膜エレメントと透過流体収集部材との固定を装脱着可能なスナップを嵌め合うことで行う

15 ことにより、上記目的を両立することが可能であることを見出し、本発明に至った。

すなわち、本発明は、下記のものである。

(1) 供給流体入口と連通する供給流体分配管の周りに選択透過性を有する中空糸膜の集合体が配置されており、中空糸膜の集合体の両端部が別々

20 に樹脂で固定された後、少なくとも一方の端部が切断され該中空糸膜の中空孔が開口している中空糸膜エレメントと、中空糸膜の開口部から流出する透過流体を集合させる透過流体収集部材が、装脱着可能なスナップで不連続的に固定されている中空糸膜サブモジュール。

(2) 供給流体入口と連通する供給流体分配管の周りに選択透過性を有する中空糸膜が交差状に配置されていることを特徴とする(1)に記載の中空糸膜サブモジュール。

25

(3) 中空糸膜が逆浸透膜であることを特徴とする(1)または(2)に記載の中空糸膜サブモジュール。

(4) スナップが樹脂製であることを特徴とする (1) ~ (3) いずれかに記載の中空糸膜サブモジュール。

(5) スナップの衝撃強度が $2.5\text{kg}\cdot\text{cm}/\text{cm}$ 以上、曲げ弾性係数が $10,000\sim 200,000\text{kg}/\text{cm}^2$ 、引張強度が $400\text{kg}/\text{cm}^2$ 以上である (1) ~ (4) いずれかに記載の中空糸膜サブモジュール。

(6) 圧力容器に (1) ~ (5) いずれかに記載の中空糸膜サブモジュールを 2 本以上、装着したことを特徴とする中空糸膜モジュール。

本発明における供給流体分配管の周りに配置されている中空糸膜の集合体を構成する中空糸膜が交差状に配置されているとは、中空糸膜が供給流体分配管の軸方向に対して捲き角度をもって互いに交差している状態に配置されていることを意味する。例えば、供給流体分配管を回転させ、中空糸膜または複数本の中空糸膜からなる束を供給流体分配管の軸方向にトラバースさせながら、捲き上げていくことで作製することができる。捲き角度は、供給流体分配管の軸方向に対する中空糸膜の角度であり、中空糸膜集合体の内層部と外層部では、角度が異なる場合がある。例えば、最外層部での角度の場合、 $5\text{度}\sim 70\text{度}$ が好ましく、 $15\text{度}\sim 50\text{度}$ がより好ましい。この角度が小さくなりすぎると、巻上げ時に中空糸膜または、中空糸膜束が崩れやすくなるし、また、中空糸膜間の空間の確保が困難で、交差配置本来の効果が発現しにくくなることがある。また、この角度が大きすぎると開口間の中空糸膜の長さが長くなり、中空部内の流動圧損が大きくなり、有効差圧の減少、透過性能、分離性能の低下が生じる可能性がある。

本発明における供給流体分配管とは、供給流体入口から供給される流体を中空糸集合体に分配させる機能を有する管状部材である。好適な一例としては、多孔管があげられる。供給流体分配管を用いることにより、供給流体が中空糸集合体に均一に分配可能となる。中空糸膜エレメントの長さが長い場合や中空糸膜集合体の外径が大きい場合に特に効果的である。供給流体分配管は中空糸膜の集合体の中心部に位置させるのが、本発明にお

いてはより好ましい。中空糸膜エレメントの径に対して供給流体分配管の径が大き過ぎると、モジュール内の中空糸膜が占める割合が減少し、結果としてモジュールの膜面積が減少するため処理量が低下することがある。

また、供給流体分配管の径が小さすぎると、供給流体分配管内を供給流体が流動する際の圧力損失が大きくなり、結果として中空糸膜にかかる有効差圧が小さくなり透水量が低下することがある。また、供給流体が中空糸膜層を流れる際に受ける中空糸膜の張力により供給流体分配管が破損する場合がある。これらの影響を、総合的に考慮し、最適な径を設定することが好ましい。この供給流体分配管の径は、例えば、中空糸膜エレメントの
5 中空糸膜層部の外径が約 2 6 0 mm の場合においては、外径が 5 0 mm ~ 9 0 mm が好ましく、6 0 mm ~ 8 0 mm がより好ましい。一方、供給流体分配管の内径は 4 5 mm ~ 8 5 mm が好ましく、5 5 mm ~ 7 5 mm がより好ましい。供給流体分配管の肉厚は、供給流体分配管が FRP 製の場合では 1 mm ~ 7 mm、より好ましくは 2 mm ~ 5 mm である。

15 本発明における中空糸膜の集合体の両端部が別々に樹脂で固定された後、少なくとも一方の端部が切断され、該中空糸膜の中空孔が開口しているとは、中空糸膜の集合体の両端部を別々に接着用樹脂でポッティングするなどして中空糸膜間の隙間や中空糸膜と樹脂との隙間より供給流体が漏れないように密閉固定されていることである。使用する接着樹脂としては、処
20 理流体の特性、使用条件によって、エポキシ系樹脂、ウレタン系樹脂、シリコン系樹脂などから選ぶのが好ましい。接着剤で固定された両端部は、中空糸膜の中空孔が開口するように切断するなどの処理をして中空糸膜エレメントとする。1 つまたは複数個の中空糸膜サブモジュールを供給流体入口、濃縮流体出口、透過流体取出口を有する圧力容器に装着し、中空糸
25 膜モジュールとする。

本発明における中空糸膜サブモジュールとは、中空糸膜エレメントに透過流体収集部材などの部材を装着して、中空糸膜開口部からの透過流体を集合して取り出すことを可能としたものである。片端部のみが開口してい

る場合は、片端に透過流体収集部材を装着してサブモジュールとする。この場合、他方の端部は圧力容器の端部側にある透過流体収集部材に運転圧力を利用して圧着させることでシールするのが好ましい。また、両端が開口している場合は、両端に透過流体収集部材を装着して中空糸膜サブモジュールとする。両端が開口している場合は、両端の中空糸膜開口部からの透過流体をまとめて取り出すため、両端部の透過流体収集部材を連通する内部管を透過流体収集部材に接続して用いるのも好ましい態様である。さらに、1つの圧力容器に2本以上の両端開口の中空糸膜エレメントを装着することも可能であり、開口端部が圧力容器内の端部から離れたところに位置する場合は、透過流体収集部材が中空糸膜エレメント開口端部に装着された中空糸膜サブモジュールとして装着する方が、透過流体が外部の供給流体等に汚染されずに取り出せるため好ましい。本発明において、1つまたは複数個の中空糸膜サブモジュールを供給流体入口、濃縮流体出口、透過流体取出口を持った圧力容器に装着し、中空糸膜モジュールとする。

15 中空糸膜エレメントと透過流体収集部材が接着固定され脱着が困難なものより、可逆的に装脱着できる固定方法が、膜交換や性能検査、開口面修復が容易である点で好ましい。

本発明における圧力容器は、中空糸膜サブモジュールを収納し、中空糸膜に有効な圧力差を与えることができ、中空糸膜による分離操作が可能であり、外部に対して流体が漏れたりせず、中空糸膜サブモジュールの供給側の空間と透過側の空間および透過側の空間と濃縮側の空間が流密に分離されて、それぞれの流路を確保できることが好ましい。また、供給流体入口、濃縮流体出口、透過流体出口の位置は特に限定されないが、圧力容器の端部付近にあることが操作上、効率的活用の点から好ましい。また、中空糸膜サブモジュールが複数個装着される場合は、各サブモジュールの透過流体が個別に取り出せるように透過流体出口が複数設けられていることが、膜サブモジュールの運転管理の点から好ましい。例えば、2本の膜サブモジュールが収納されている場合は、供給流体入口が一方の端部の中央

付近にあり、透過流体出口が両端の中央部以外にそれぞれあり、濃縮流体出口が他方の端部付近の側壁に設けられているものが一例として挙げられる。

本発明におけるスナップとは、中空糸膜エレメントと透過流体収集部材を可逆的に装脱着でき、かつ固定可能とするために、中空糸膜エレメントの端部と透過流体収集部材とを外周面上で不連続的に嵌め合い状態で固定する部材である。嵌め合い状態とは、スナップの一方の端部の凸部が中空糸膜エレメント端部に設けられた凹部に嵌め込まれ、スナップの他方の端部の凸部が透過流体収集部材に設けられた凹部に嵌め込まれた状態であり、外すような力を外部より強制的に加えれば外れるが、自然脱落するような構成ではない。

このスナップは、装脱着時の操作性や繰返し装脱着に対する耐久性の点から大きな衝撃強度と適度な弾性係数を、また装着後の膜モジュール使用時や繰返し装脱着に対する耐久性の点からは大きな強度を有する素材からなることが好ましい。スナップの衝撃強度は、たとえば ASTM の D256 の試験法による測定値で 2.5 (kg·cm/cm) 以上が好ましく、3 (kg·cm/cm) 以上がより好ましい。弾性係数に関しては、例えば ASTM の D790 の試験法で得られる曲げ弾性係数が 10,000 (kg/cm²) ~ 200,000 (kg/cm²) の範囲が好ましく、20,000 (kg/cm²) ~ 100,000 (kg/cm²) の範囲がより好ましい。また、強度に関しては、例えば ASTM の D638 の試験法で示される引張強度が 400 (kg/cm²) 以上が好ましく、500 (kg/cm²) 以上がより好ましい。これらの範囲を外れる素材では、装脱着時の操作性が良くなく、場合によっては嵌め込む際に破断する可能性がある。また、使用時に逆圧がかかり、スナップに引っ張り力が生じる場合に破断する可能性がある。そのため、好ましい材質の一例として樹脂があげられる。例えば、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、またはこれらと繊維との強化プラスチックがあげられる。具体例としては、塩化ビニル系樹脂、ポリプロピレン系樹脂、ポリエチレン系樹脂、ポリアセタール系樹脂、ポリスルホン系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリア

ミド系樹脂、ポリブチレンテレフタレート系樹脂、ABS樹脂、エポキシ系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリエーテルエーテルケトン系樹脂などである。これらの樹脂は海水等の接触でも腐食せず、また、強度、軽量、低コストの点からも好ましい。より好ましいスナップ材質としては、塩化ビニル系樹脂、ポリアセタール系樹脂、ポリアミドイミド系樹脂や、繊維強化されたポリアミド系樹脂などである。

また、スナップの形状は、中空糸膜エレメントと透過流体収集部材が嵌め合い状態での固定を実現できるものであれば特に限定されない。図4にスナップが嵌め合う状態、透過流体収集部材と中空糸膜エレメントとの関係の一例を示しており、スナップの端部の形状は、嵌め合い状態を実現でき、自然脱落しないものであれば特に限定されないが、例えば、スナップの透過流体収集部材側の角度 $\theta 17-1$ およびスナップの中空糸膜エレメント側の角度 $\theta 17-2$ は90度または90度以下が好ましい。装脱着時の操作性の点からは、一方が90度以下で、他方が90度の場合が好ましい。 $\theta 17-1$ は透過流体収集部材のスナップ用溝の角度 $\theta 6$ とほぼ同等、 $\theta 17-2$ は中空糸膜エレメントのスナップ用溝部の角度 $\theta 4$ とほぼ同等であることが好ましい。なお、スナップの形状は、直線から構成されるものに限定されず応力集中を避けるために、部位によっては曲面を利用した形状が好ましい。同様にスナップの透過流体収集部材側の突起部長 $L17-1$ およびスナップの中空糸膜エレメント側の突起部長 $L17-2$ はそれぞれ、透過流体収集部材のスナップ溝20の深さ $L6$ および中空糸膜エレメントのスナップ用溝21の深さ $L4$ 以下であることが好ましい。これらより大きいと、スナップによる固定が不安定になる場合がある。さらに、スナップの突起部間距離 $W17$ は透過流体収集部材と中空糸膜エレメントの各スナップ用溝間の距離 $W64$ とほぼ同等であることが好ましい。 $W17$ が大きすぎると、自然脱落する原因になり、小さすぎると装着が困難になる場合がある。この $W64$ はO-リング15が運転時の加圧により変形する前の状態の値であり、加圧により変形した場合は透過流体収集部材と中空糸膜エレメント間の距離 $W15$

が極めて小さくなり、ほとんど 0 になる場合もあり得る。そのような場合でもスナップが自然脱落しないようなスナップの突起物の形状と溝形状の関係が望ましい。一方、このような加圧時には、透過流体収集部材と中空糸膜エレメントの各スナップ用溝間の距離 W64 が減少するため、この場合にスナップが両溝間で圧縮応力を受けることの無い様に中空糸膜エレメントのスナップ用溝の幅 W4 および／または透過流体収集部材のスナップ用溝の幅 W6 は、これらの W64 の減少変化分を見込んで大きめに設定するのが好ましい。W4 はスナップの装脱着性と自然脱落し難さの点から、スナップの中空糸膜エレメント側の溝に入る突起部の軸方向厚み W17-2 の 1.0 倍から 1.3 倍が好ましく、1.1 倍から 1.2 倍がより好ましい。但し、W4 と W17-2 の差異は加圧時に O-リングの変形による変位量より大きいことが好ましい。W6 も同様に、スナップの透過流体収集部材側の溝に入る突起部の軸方向厚み W17-1 と同等かそれ以上であることが好ましい。スナップが図 4 のような形状で、スナップの透過流体収集部材側の角度 $\theta 17-1$ が 90 度の場合、W6 は W17-1 と同等が好ましい。ここでは、スナップの透過流体収集部材側の角度 $\theta 17-1$ が 90 度の場合を例示したが、逆に、スナップの中空糸膜エレメント側の角度 $\theta 17-2$ が 90 度の場合でも構わない。

スナップの幅、太さはスナップの中空糸膜エレメントの軸と垂直方向の断面積とスナップの個数から求められる総断面積とスナップの材質の有する物性値（強度等）および、使用時に作用すると想定される力に安全率を考慮して設定するのが好ましい。スナップの幅はスナップの厚みから算出される断面積にスナップ素材の引張強度を乗じた値が、スナップが受ける可能性のある設計荷重に安全率を乗じた値より大きくなることが好ましい。安全率は、2 以上が好ましく、3 以上がより好ましい。スナップが受ける可能性のある設計荷重とは、引張荷重であり、例えば、逆浸透膜での海水淡水化の場合では、運転停止時に透過流体収集部材内部に透過流体が流れることにより生じる圧力が想定され、これに受圧面積を乗じて引張荷重が算出される。これらの範囲を満たしながら、操作性や圧力容器の内面との

隙間距離からスナップの厚みや幅が設定されることが好ましい。本発明においてスナップの厚みは1 mmから7 mmが好ましく、2 mmから5 mmがより好ましい。スナップの幅は、透過流体収集部材の外周長の数分の1から数十分の1が好ましく、例えば、透過流体収集部材の直径が280 mm
5 mの場合は、10 mmから150 mmが好ましく、20 mmから100 mmがより好ましい。

本発明におけるスナップが外周部に不連続で配置されるとは、外周部全周にわたってスナップが配置されるのではなく、スナップが有る部分と無い部分が存在することである。スナップが有る部分は中空糸膜エレメント
10 を圧力容器内の中心位置に固定する役割があり、スナップが無い部分は濃縮流体が通過する流路を確保する役割を有する。このスナップが占める割合は、透過流体収集部材の外周の10%以上60%以下が好ましく、30%以上50%以下がより好ましい。この割合が大きすぎると、供給流体や濃縮流体が通過する流路体積が小さくなるため、圧力損失が増加し透過水量
15 が低下することがある。逆に、スナップ占有割合が小さすぎると、スナップの強度が小さくなりスナップが破損する可能性がある。また、透過流体収集板を固定するための強度が不足するため、透過流体が漏れたり、濃縮流体が混入することがある。

また、スナップの配置方法は、複数のスナップがおおよそ対称状態で配置
20 される方がバランス面、圧力容器中央部への配置の容易性の面から好ましい。スナップの数は特に限定されないが、多過ぎると装脱着時の操作が煩雑になることがあり、逆に、少なすぎるとスナップ自体を大きくする必要があるため、装脱着作業が困難となることがある。3～16個が好ましく、4～10個がより好ましい。

25 本発明における透過流体収集部材とは、中空糸膜エレメント開口端部の中空糸膜開口部から流出する透過流体を集合し、中空糸膜開口部での流路を確保する部材である。中空糸膜エレメントの構造によっては端部にかかる圧力を受ける役割を有するものである。その形状は特に限定されないが、

透過流体を収集するために、中空糸膜の開口部を閉塞しないような空間を確保できる構造が好ましい。例えば、中空糸膜エレメントの開口端部に接触する面に同心円状に三角溝を構成し、山部で開口端部の圧力を保持し、谷部で透過流体の流路を形成する方式がある。この山部が開口端部と接触する面積は、中空糸膜開口端部からの透過流体の流れを制限しないという意味で小さい方が好ましいが、小さすぎると圧力を保持しきれない場合があるので、中空糸膜エレメント開口端部面積に対して0.1%~2%、より好ましくは0.2%~1%である。また、その素材は特に限定されないが、化学的安定性、経済性、強度、弾性から樹脂製が好ましい。好ましい一例としては、ポリアセタール、塩化ビニルなどがあげられる。スナップの材質と同じであってもかまわない。透過流体収集部材と圧力容器との隙間は濃縮流体の流路となるため、透過流体収集部材の外面と圧力容器の内面の間には濃縮流体が通過する際に過剰な圧力損失が生じないような隙間を確保できる大きさであることが好ましい。例えば、逆浸透膜モジュールで、海水淡水化を行う場合には、透過流体収集部材の外面と圧力容器の内面との距離は1mm~10mmが好ましく、2mm~8mmがより好ましい。

本発明における選択透過性を有する中空糸膜としては、精密ろ過膜、ナノろ過膜、及び逆浸透膜などが挙げられるが、本発明は、特に海水の淡水化などに使用される逆浸透中空糸膜モジュールに有効である。

本発明において中空糸膜は逆浸透膜であることが好ましい。逆浸透膜とは、数十ダルトンの分子量の分離特性を有する領域の分離膜であり、具体的には、0.5MPa以上の操作圧力で、食塩を90%以上除去可能であるものである。海水淡水化に使用される中空糸型逆浸透膜は、操作圧力が大きいと、一般に中空糸膜径が小さく、中空部内の流動圧損が大きくなりやすい。また、被処理流体である海水は濁質が高く、中空糸膜間に詰まらないような構造が好適であり、本発明の効果が得られやすい一例である。

本発明における中空糸膜の内径は、中空糸膜の内径と外径とから算出さ

れる中空率を考慮して設定することが好ましい。使用圧力により最適値は異なるが、例えば、逆浸透で海水を淡水化するような高圧で運転する場合は、 $30\text{ }\mu\text{m}\sim 200\text{ }\mu\text{m}$ が好ましく、 $40\text{ }\mu\text{m}\sim 150\text{ }\mu\text{m}$ がより好ましい。内径が小さすぎると、中空部内の流動圧損が大きくなり、透過水量が低下することがある。一方、内径が大きすぎると、中空糸膜径自体が大きくなるため、容積当たりの膜面積が大きく取れなくなり、処理量が低下する可能性がある。

本発明における、圧力容器に2本以上の中空糸膜サブモジュールを装着した中空糸膜モジュールとは、各中空糸膜サブモジュールが供給流体、透過流体、濃縮流体それぞれが連通している状態で装着されていることである。2本以上の中空糸膜サブモジュールを1つの圧力容器に装着することにより、中空糸膜サブモジュール1本当たりの圧力容器のコストが下げられるとともに、膜モジュール間を接続する配管が少なくなり、中空糸膜サブモジュール1本当たりのスペースも小さくできるため好ましい。一本の圧力容器に収容可能な中空糸膜サブモジュールの本数は特に制限されない。例えば、海水淡水化用の逆浸透膜の場合は6本以内が好ましい。本数が多すぎると透過流体を圧力容器から取り出す際の流路が長くなり、圧力損失が大きくなるので透過流量が減少する場合があります、また、中空糸膜サブモジュールの装脱着作業の操作が困難になる場合がある。

中空糸膜モジュールへの供給流体の流量に対する中空糸膜モジュールの透過流体の流量の割合である回収率が低い場合や、膜モジュールの圧力損失を小さくしたい場合は、複数個の中空糸膜サブモジュールを並列接続にするのが好ましい。並列接続とは、供給流体が各中空糸膜サブモジュールに並列に供給されること意味し、各中空糸膜サブモジュールへ供給される供給流体の組成、濃度は、各中空糸膜サブモジュールで基本的には同じとなる。このため、各中空糸膜サブモジュールが受ける負荷が一様に分散され、特定の中空糸膜サブモジュールへ負荷が集中することがない。また、各中空糸膜サブモジュールへの供給流量が小さいため、モジュール圧力損

失が小さくなり、有効差圧が確保できる。

- 一方、回収率が高い場合や、各中空糸膜サブモジュールの透過流体の濃度を変えたい場合は、複数個の中空糸膜サブモジュールを直列接続にするのが好ましい。直列接続とは、1つの圧力容器の中に、供給流体が各中空糸膜サブモジュールに、供給側、濃縮側、下流の中空糸膜サブモジュールの供給側、濃縮側の順に順次供給されること意味し、中空糸膜サブモジュールへ供給される供給流体の組成、流量は、各中空糸膜サブモジュールで基本的には異なり、下流の中空糸膜サブモジュールへの供給流体ほど、非透過成分、すなわち除去対象成分の濃度が高くなり、流量も小さくなる。
- そのため、中空糸膜モジュールの操作条件、特に回収率にもよるが、中空糸膜サブモジュールから得られる透過流体の流量、濃度は中空糸膜サブモジュール毎に異なるのが一般的である。濃縮側の中空糸膜サブモジュールほど、透過流体の流量が少なく、非透過成分、すなわち除去対象成分の濃度が高くなる。したがって、各中空糸膜サブモジュールから得られる透過流体の濃度は異なり、後処理と組み合わせる場合には、透過流体の濃度が高い中空糸膜サブモジュールの透過流体のみ後処理するなど、トータルとしての最適化が可能となる。さらに、このように直列接続の場合は、中空糸膜サブモジュールに供給される供給流体の流量が大きいため、回収率が高い場合でも中空糸膜表面の流速が大きくなり、膜表面の濃度分極の抑制や、汚れ成分の付着抑制に効果的である。

図面の簡単な説明

図 1

- 本発明の中空糸膜サブモジュールのうち片端のみに透過流体収集部材を設置している場合の一例で、圧力容器に1本装着した場合の中空糸膜モジュールの簡単な構成図を示す。

図 2

本発明の中空糸膜サブモジュールの一例で、片端のみに透過流体収集部材を設置している場合の簡単な構成図を示す。

図 3

本発明の中空糸膜サブモジュールの一例で、中空糸膜開口部とスナップと圧力容器との関係を示すための、軸方向に垂直方向の端面部の簡単な模式図を示す

5 図 4

本発明の中空糸膜サブモジュールの一例で、中空糸膜エレメント端部および透過流体収集部材にスナップを嵌め合う状態を模式的な図で示す。

図 5

10 本発明の中空糸膜サブモジュールの一例のうち、片端のみに透過流体収集部材を設置している場合で、圧力容器に 2 本を並列接続で装着した場合の中空糸膜モジュールの簡単な構成図を示す。

図 6

本発明の中空糸膜サブモジュールの一例で、両端に透過流体収集部材を設置している場合の簡単な構成図を示す。

15 図 7

本発明の中空糸膜サブモジュールの一例のうち、両端に透過流体収集部材を設置している場合で、圧力容器に 2 本を並列接続で装着した場合の中空糸膜モジュールの簡単な構成図を示す。

図 8

20 本発明のスナップの一例の簡単な構造図を示す。

(符号の説明)

1、1' : 中空糸膜サブモジュール

2、2' : 中空糸膜

3、3' : 供給流体分配管

25 4 a、4 b、4 a'、4 b' : 樹脂

5 a、5 b、5 a'、5 b' : 中空糸膜開口部

6 a、6 b、6 a'、6 b' : 透過流体収集部材

7、7' : 内部管

- 8 : 圧力容器
- 9、9' : 供給流体入口
- 10、10' : 濃縮流体出口
- 11、11' : 透過流体出口
- 5 12、12' : 供給流体
- 13、13' : 濃縮流体
- 14、14' : 透過流体
- 15 : Oーリング
- 16 : 中間コネクター
- 10 17 : スナップ
- 18、18' : 中空糸膜エレメント
- 19 : パッキン
- 20 : 透過流体収集部材のスナップ用溝
- 21 : 中空糸膜エレメントのスナップ用溝
- 15 L4 : 中空糸膜エレメントのスナップ用溝の深さ
- L6 : 透過流体収集部材のスナップ用溝の深さ
- L17-1 : スナップの透過流体収集部材側の突起部長
- L17-2 : スナップの中空糸膜エレメント側の突起部長
- W4 : 中空糸膜エレメントのスナップ用溝の幅
- 20 W6 : 透過流体収集部材のスナップ用溝の幅
- W15 : 透過流体収集部材と中空糸膜エレメント間の距離
- W17 : スナップの突起部間距離
- W17-1 : スナップの透過流体収集部材側の溝に入る突起部の軸方向厚み
- W17-2 : スナップの中空糸膜エレメント側の溝に入る突起部の軸方向厚み
- 25 W64 : 透過流体収集部材と中空糸膜エレメントの各スナップ用溝間の距離
- $\theta 4$: 中空糸膜エレメントのスナップ用溝部の角度
- $\theta 6$: 透過流体収集部材のスナップ用溝の角度
- $\theta 17-1$: スナップの透過流体収集部材側の角度

θ 17-2 : スナップの中空糸膜エレメント側の角度

発明を実施するための最良の形態

実施例

以下に、実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれらの実施例
5 により何ら制限されるものではない。なお、実施例は、海水淡水化用の逆
浸透膜の場合を示す。

本実施の形態にかかる中空糸膜サブモジュール1は、選択透過性を有す
る中空糸膜2を供給流体分配管3の周りに配置し、両端部は樹脂4a、4
bで固定されており、両端部に中空糸膜開口部5a、5bを有する中空糸
10 膜エレメントの一方の中空糸膜開口部5bには、透過流体収集部材6bが
スナップ17で嵌め合わせ状態で固定されており、他方の中空糸膜開口部
5aには、透過流体収集部材6aが圧力容器内で圧接される状態となってい
る。透過流体は透過流体収集部材で集約され、一方の端の透過流体は内部
管7を通じてもう一方の透過流体収集部材6aに集められる構造となっ
15 ている。

この中空糸膜サブモジュール1は円筒状の圧力容器8に収納されており、
圧力容器8には供給流体入口9、濃縮流体出口10、透過流体出口11が設
けられている。

供給流体12が、供給流体入口9から入り、供給流体分配管3を通りなが
20 ら中空糸膜2へ円周方向の外側へ向けて供給され、一部の流体は中空糸膜
2を透過し中空糸膜開口部5a、5bから、透過流体収集部材6a、6b
と、内部管7を経て、透過流体出口11より透過流体14として取り出され
る。一方、中空糸膜2を透過しなかった濃縮流体は中空糸膜サブモジュー
ル1と圧力容器8との間の流路を通じて濃縮流体出口10から濃縮流体13
25 として取り出される。濃縮流体はOリング15によりシールされているため、
透過流体と混合することはない。

図2は本発明の中空糸膜サブモジュールのうち片端のみに透過流体収集
部材6bを設置している場合の一例で、図1の中空糸膜モジュールを構成

しているものと同型のものである。中空糸膜エレメント 18 の一方の中空糸膜開口部 5b のみ、透過流体収集部材 6b がスナップ 17 で嵌め合わせ状態で固定されている場合である。

図 3 は本発明の中空糸膜サブモジュールの一例で、中空糸膜開口部 5a とスナップ 17 と圧力容器 8 との関係を示すための、軸方向に垂直方向の端面部の断面の簡単な模式図を示している。中空糸膜エレメントの開口端部の樹脂部 4a の外周部に不連続状態でスナップ 17 がほぼ均等間隔、対称状態で、8ヶ設置されている場合を一例として示している。このスナップ 17 は透過流体収集部材と中空糸膜エレメントの端部の樹脂部 4a とを嵌め合い状態で固定しているだけでなく、中空糸膜サブモジュールが圧力容器内のほぼ中央に設置されるような効果を有している。さらに、スナップ 17 が不連続であることからスナップ 17 の無い部分は、中空糸膜サブモジュールと圧力容器内面との空隙が確保できるため、濃縮流体の流路を確保する効果もある。

図 4 は本発明の中空糸膜サブモジュールの一例で、中空糸膜エレメント端部の樹脂部 4a と透過流体収集部材 6a をスナップ 17 が嵌め合うことで装着されている状態を模式的に示した簡単な図をしている。透過流体収集部材 6a にはスナップが嵌め合うための溝が設置されおり、一方、中空糸膜エレメントの樹脂側にも溝が設置されている。樹脂側の溝は鋭角に切り込みが入っており、スナップが容易に外れることが無い様になっている。スナップの装着時は、まず、樹脂 4a 側に嵌めてから、透過流体収集部材 6a 側に装着することで、しっかりとした固定が可能である。逆に脱着する場合は透過流体収集部材 6a 側から、専用ジグを用いてはせずせば、脱着が可能である。

図 5 は本発明の中空糸膜サブモジュールの一例のうち、片端のみに透過流体収集部材を設置している場合で、圧力容器に 2 本を並列接続で装着した場合の中空糸膜モジュールの簡単な構成図を示している。個々の中空糸膜サブモジュール 1、1' 内の流体の流れ、構造は基本的には図 1 と同様

である。2本の中空糸膜サブモジュール1、1'は中間コネクター16で接続され、供給流体12は、一部は中空糸膜サブモジュール1に供給され、残りはこの中間コネクター16を通じて、中空糸膜サブモジュール1'に供給される。中空糸膜サブモジュール1、1'の濃縮流体はいずれも濃縮流体出口10から取り出される。中空糸膜サブモジュール1、1'の透過流体はそれぞれの透過流体出口11、11'から取り出される。

図6は本発明の中空糸膜サブモジュールの一例で、両端に透過流体収集部材を設置している場合の簡単な構成図を示す。

図7は本発明の中空糸膜サブモジュールの一例のうち、両端に透過流体収集部材を設置している場合で、圧力容器に2本装着した場合の中空糸膜モジュールの簡単な構成図を示す。

以下に、実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれらの実施例により何ら制限されるものではない。なお、実施例は、海水淡水化用の逆浸透膜の場合を示す。

15 (スナップの衝撃強度の測定)

ASTMのD256の試験法でのノッチ付きアイゾット法に準じて測定した。

(スナップの曲げ弾性係数の測定)

ASTMのD790の試験法に準じて曲げ弾性係数を測定した。

(スナップの引張強度の測定)

20 ASTMのD638の試験法に準じて測定した。

(実施例1)

(中空糸膜の作製)

三酢酸セルロース(酢化度61.4)40重量部をエチレングリコール18重量部及びN-メチル-2-ピロリドン42重量部よりなる溶液を混合後昇温し製膜原液とした。この溶液を減圧下で脱泡した後、ノズルより空中走行部を経て14℃の水65重量部、エチレングリコール10.5重量部、N-メチル-2-ピロリドン24.5重量部からなる凝固液中に吐出させ中空糸を形成させた。その後、中空糸膜を常温で水洗し過剰の溶媒、

非溶媒を除去した後、熱水で処理し三酢酸セルロース膜からなる中空糸型逆浸透膜を作製した。得られた中空糸膜は外径が $137\mu\text{m}$ 、内径が $53\mu\text{m}$ であった。この中空糸膜の脱塩性能を約1mの有効長さで測定したところ、透水量 $61\text{L}/\text{m}^2\text{日}$ 、食塩除去率 99.8% であった。測定条件は、
5 供給圧力 5.4MPa 、温度 25°C 、食塩濃度 3.5% 、回収率 2% 以下であった。なお、食塩の除去率は下式で定義される。

$$\text{除去率} = (1 - (\text{透過水中の溶質濃度} / \text{供給水中の溶質濃度})) \times 100 (\%)$$

(中空糸膜サブモジュールの作製)

10 これらの中空糸膜を多孔管からなる供給流体分配管の周りに交差状に配置させ、中空糸膜の集合体を形成させた。供給流体分配管をその軸を中心に回転させながら、中空糸膜の束をトラバースさせ、供給流体分配管の周りに巻きつけることにより中空糸膜が交差状に配置される。最外層における中空糸膜は軸方向に対して 47° であった。この中空糸膜の集合体の両
15 端部をエポキシ樹脂でポッティングし固定させた後、両端を切断して中空糸膜の中空孔を開口させた。その後、供給流体分配管の内部に内部管を通し、両端部を透過流体収集部材で固定した。一方の端部の透過流体収集部材は図3、図4に示すような8個のスナップを嵌め合い状態で固定することにより、中空糸膜エレメント端部と固定し、図2に示すような中空糸
20 膜サブモジュールを作製した。他端部は供給流体入口を構成するコネクターを中心にして透過流体収集部材を保持した。なお、スナップの材質は透過流体収集部材と同じポリアセタール樹脂を用いた。このポリアセタール樹脂の衝撃強度、曲げ弾性係数、引張強度はそれぞれ、 $7.6(\text{kg}\cdot\text{cm}/\text{cm})$ 、 $28,700(\text{kg}/\text{cm}^2)$ は、 $700(\text{kg}/\text{cm}^2)$ であった。スナップは図8に示すような形
25 状であり、円周方向には中空糸膜エレメントおよび透過流体収集部材の円周形状に沿った円弧状の形状をなしている。図4に相当するスナップの中空糸膜エレメント側の突起物の角度 θ_{17-2} は 63° であり、応力集中を避けるために鋭角ではなく曲面構造で丸みを形成している。スナップの透過

流体収集部材側の突起物の角度 $\theta 17-1$ は 90° である。スナップの透過流体収集部材側の突起部長 $L17-1$ は 15 mm で透過流体収集部材のスナップ溝の深さ $L6$ の 16 mm より小さい。なお、 $L17-1$ はスナップの中空糸膜エレメント側の突起部長 $L17-2$ より大きく装着安定性を確保している。

5 スナップ突起物間距離 $W17$ は 45 mm で、透過流体収集部材と中空糸膜エレメント間の距離 $W15$ を 0.5 mm とした場合の透過流体収集部材と中空糸膜エレメントの各スナップ用溝間の距離 $W64$ の 45 mm と同じである。加圧時に $W15$ が 0 となった場合、 0.5 mm 、 $W17$ が $W64$ より長くなるが、中空糸膜エレメントのスナップ用溝の幅 $W4$ が 4 mm となっているため、こ

10 れらの距離は吸収でき、スナップに圧縮応力がかかることを回避している。なお、透過流体収集部材の外径は 274 mm であり、圧力容器内径 280 mm に対して、半径で 3 mm の隙間を形成している。スナップの円周方向の幅は 50 mm 、スナップの厚みは 2.5 mm であり、個数が 8 ケで、円周状で対称配置に設置しており、スナップ装着時の外径 279 mm の外周

15 長 876 mm に対して 46% を占めている。主に残りの 54% を占める空隙の部分で濃縮流体の流路を形成している。

(中空糸膜モジュールの性能評価)

この中空糸膜サブモジュールを圧力容器に 1 本装着して図 1 に示すようなシングルタイプのモジュールとした。このモジュールに温度 25°C 、食塩 3.5 重量%の食塩水溶液を供給流体入口に操作圧力 5.4 MPa で供給して、逆浸透処理を行い、 2 時間経過後の透過水流量、透過水濃度等を測定した。この場合の回収率、すなわち、膜モジュールへの供給水流量に対する透過水流量の割合は 30% であった。食塩除去率は 99.5% であり、透過水は供給水や濃縮水と混在することなく、モジュールから取り出

20 されていることが判明した。この中空糸膜モジュールから中空糸膜サブモジュールを取り出し、さらに中空糸膜サブモジュールから透過流体収集部材をジグを用いて容易に装脱着が可能であった。また、逆浸透膜による海水淡水化運転で停止時に生じる逆流現象を想定した 2 kg/cm^2 での逆圧耐性

25

試験を実施したが、試験前後でスナップに異常は認められなかった。

(実施例 2)

実施例 1 と同様に中空糸膜、および、中空糸膜エレメントを作製し、透過流体収集部材等を取り付けて中空糸膜サブモジュールとした。中空糸膜
5 サブモジュール 2 本を中間コネクタとともに圧力容器に装着して、図 5 に示すような並列配置のダブルタイプモジュールを作製した。実施例 1 と同様の条件で逆浸透処理を実施した。その結果、食塩除去率は 99.5% であった。また、実施例 1 と同様に、この中空糸膜モジュールから中空糸膜サブモジュールを取り出し、さらに中空糸膜サブモジュールから透過流
10 体収集部材をジグを用いて容易に装脱着が可能であった。また、逆浸透膜による海水淡水化運転で停止時に生じる逆流現象を想定した 2 kg/cm² の逆圧耐性試験を実施したが、試験前後でスナップに異常は認められなかった。

(実施例 3)

15 実施例 1 と同様に中空糸膜、および、中空糸膜エレメントを作製し、両端部に透過流体収集部材をスナップを用いて嵌め合い状態で固定して、図 6 に示すような中空糸膜サブモジュールを作製した。中空糸膜サブモジュール 2 本を中間コネクタとともに圧力容器に装着して、図 7 に示すような並列配置のダブルタイプモジュールを作製した。実施例 1 と同様の条件
20 で逆浸透処理を実施した。その結果、食塩除去率は 99.5% であった。また、実施例 1 と同様に、この中空糸膜モジュールから中空糸膜サブモジュールを取り出し、さらに中空糸膜サブモジュールから透過流体収集部材をジグを用いて容易に装脱着が可能であった。また、逆浸透膜による海水淡水化運転で停止時に生じる逆流現象を想定した 2 kg/cm² の逆圧耐性試
25 験を実施したが、試験前後でスナップに異常は認められなかった。

(比較例 1)

実施例 1 と同様に中空糸膜、および、中空糸膜エレメントを作製した。片端部に透過流体収集部材をネジを利用して固定した。他端部は供給流体

入口を構成するコネクタを中心にして透過流体収集部材を保持した。圧力容器に 1 本を装着して、実施例 1 と同様の条件で逆浸透処理を実施した。その結果、食塩除去率は 98.0%と低く、時間の経過とともに低下した。実施例 1 と同様に、この中空糸膜モジュールから中空糸膜サブモジュール
5 を取り出し、さらに中空糸膜サブモジュールから透過流体収集部材を脱着しようとしたところ、ネジ部の緩みが観察され、透過流体収集部材の透過水に濃縮水が混在していた。

(比較例 2)

実施例 1 と同様に中空糸膜、および、中空糸膜エレメントを作製した。
10 片端部に透過流体収集部材を接着剤で固定した。他端部は供給流体入口を構成するコネクタを中心にして透過流体収集部材を保持した。圧力容器に 1 本を装着して、実施例 1 と同様の条件で逆浸透処理を実施した。その結果、食塩除去率は 99.5%であった。実施例 1 と同様に、この中空糸膜モジュールから中空糸膜サブモジュールを取り出し、さらに中空糸膜サ
15 ブモジュールから透過流体収集部材を脱着しようとしたところ、接着されているため脱着が困難で、透過流体収集部材の一部が破損して再利用ができない状態になった。

(比較例 3)

実施例 1 と同様に中空糸膜、および、中空糸膜エレメントを作製した。
20 両端部に透過流体収集部材を接着剤で固定した。圧力容器に 2 本を装着して、実施例 1 と同様の条件で逆浸透処理を実施した。その結果、食塩除去率は 99.5%であった。実施例 1 と同様に、この中空糸膜モジュールから中空糸膜サブモジュールを取り出し、さらに中空糸膜サブモジュールから透過流体収集部材を脱着しようとしたところ、接着されているため脱着
25 が困難で、透過流体収集部材の一部が破損して再利用ができない状態になった。

(比較例 4)

実施例 1 と同様に中空糸膜、および、中空糸膜エレメントを作製した。

片端部に透過流体収集部材を実施例と同様のスナップを対称位置に2ヶで固定した。装着後、サブモジュールを圧力容器に装着しようとした際に透過流体収集部材に力がかかった場合にずれやすく操作性に問題があった。また、逆浸透膜による海水淡水化運転で停止時に生じる逆流現象を想定した2 kg/cm²での逆圧耐性試験を実施したところ、試験後でスナップに損傷等を認め、強度不足であった。

(比較例5)

実施例1と同様に中空糸膜、および、中空糸膜エレメントを作製した。片端部に透過流体収集部材を材質が塩素化ポリエーテル樹脂からなるスナップを実施例1と同様の形状で作製し対称位置に8ヶで固定した。他端部は供給流体入口を構成するコネクターを中心にして透過流体収集部材を保持した。この塩素化ポリエーテル樹脂の衝撃強度、曲げ弾性係数、引張強度は、それぞれ2.2 (kg·cm/cm)、9,000 (kg/cm²)、380 (kg/cm²)であった。このスナップは衝撃強度、曲げ弾性係数、引張強度の不足のため、装着時に破損してしまった。

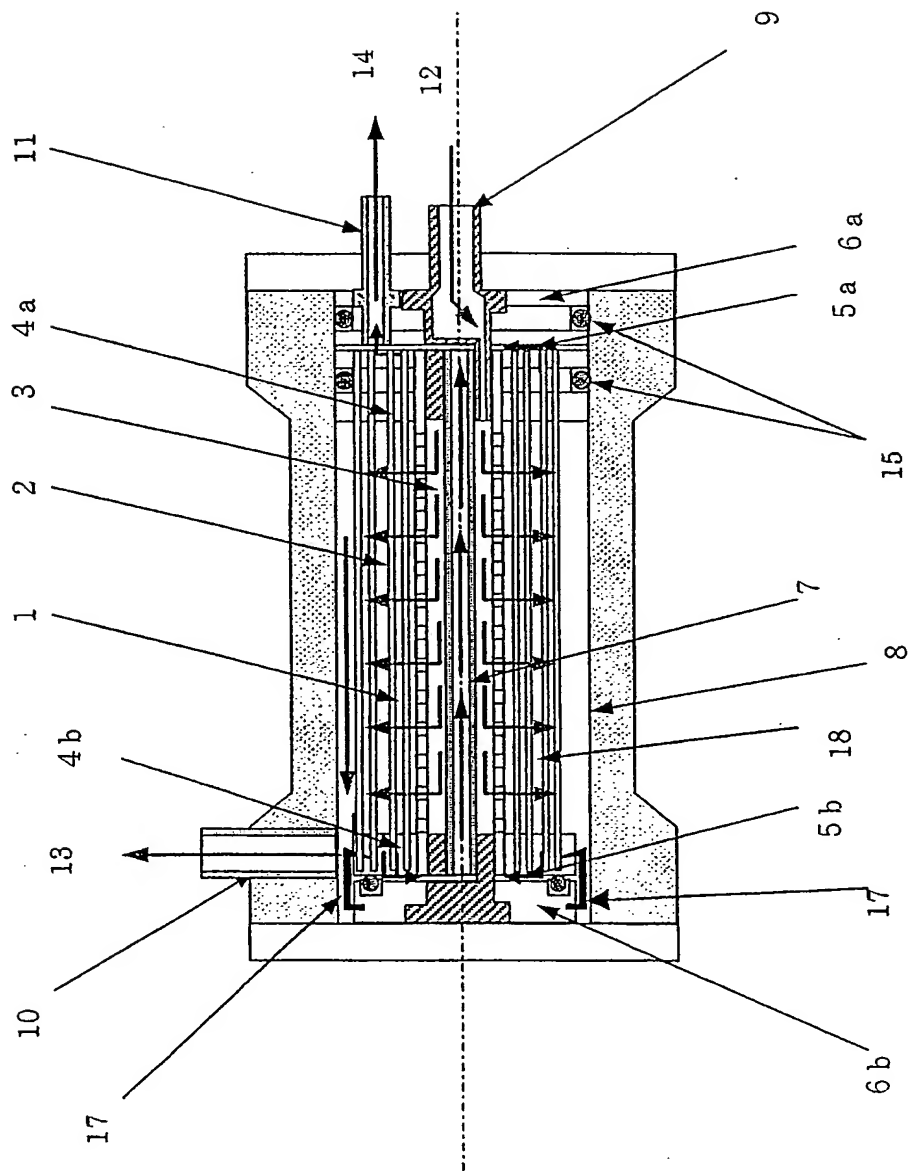
産業上の利用可能性

スナップで不連続的に外周部を嵌め合い状態で固定されることで透過流体収集部材が中空糸膜エレメントと密着しており、かつ、この透過流体収集部材が可逆的に装脱着可能である中空糸膜サブモジュールであるため、膜交換時には中空糸膜エレメントを交換して、透過流体収集部材が再度、交換後の中空糸膜エレメントに装着、利用が可能である。また、スナップが圧力容器内で中空糸膜サブモジュールの中央に位置付けることが可能で、かつ、スナップが不連続に配置されているため、濃縮流体の流路を形成することが可能であるため、海水の淡水化、かん水の脱塩、廃水の浄化、無菌水の製造、超純水の製造のような逆浸透法や、高度浄水処理や農薬、臭気物質、消毒副生成物前駆物質などの低分子有害物質の除去、硬度成分除去による軟水化処理などのナノろ過法や、電着塗装廃水からの塗料の回収、食品関係の有用物の濃縮・回収、凝集沈殿・砂ろ過代替の浄水処理などの

ような限外ろ過法や、天然ガスからのヘリウムの回収、アンモニアプラントのパージガスからの水素の分離・回収、石油の3次回収での炭酸ガスの分離、酸素富化、窒素富化などの気体分離などの幅広い用途分野に利用することができ、産業界に寄与することが大である。

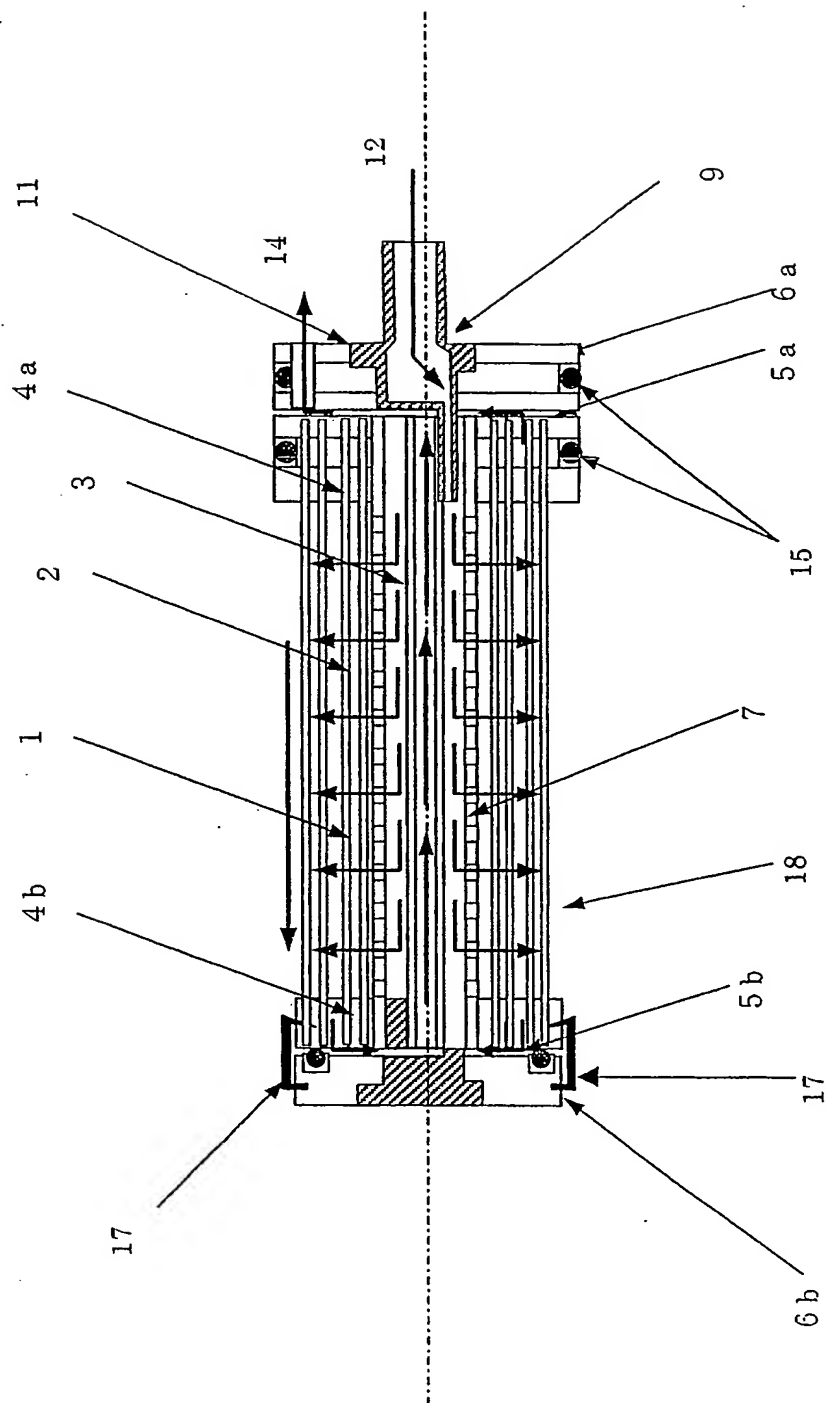
請求の範囲

1. 供給流体入口と連通する供給流体分配管の周りに選択透過性を有する中空糸膜の集合体が配置されており、中空糸膜の集合体の両端部が別々に樹脂で固定された後、少なくとも一方の端部が切断され該中空糸膜の中
5 空孔が開口している中空糸膜エレメントと、中空糸膜の開口部から流出する透過流体を集合させる透過流体収集部材が、装脱着可能なスナップで不連続的に固定されている中空糸膜サブモジュール。
2. 供給流体入口と連通する供給流体分配管の周りに選択透過性を有する中空糸膜が交差状に配置されていることを特徴とする請求項1に記載の
10 中空糸膜サブモジュール。
3. 中空糸膜が逆浸透膜であることを特徴とする請求項1または2に記載の中空糸膜サブモジュール。
- 15 4. スナップが樹脂製であることを特徴とする請求項1～3いずれかに記載の中空糸膜サブモジュール。
5. スナップの衝撃強度が $2.5\text{kg}\cdot\text{cm}/\text{cm}$ 以上、曲げ弾性係数が $10,000\sim 200,000\text{kg}/\text{cm}^2$ 、引張強度が $400\text{kg}/\text{cm}^2$ 以上である請求項1～4いずれかに
20 記載の中空糸膜サブモジュール。
6. 圧力容器に請求項1～5いずれかに記載の中空糸膜サブモジュールを2本以上、装着したことを特徴とする中空糸膜モジュール。

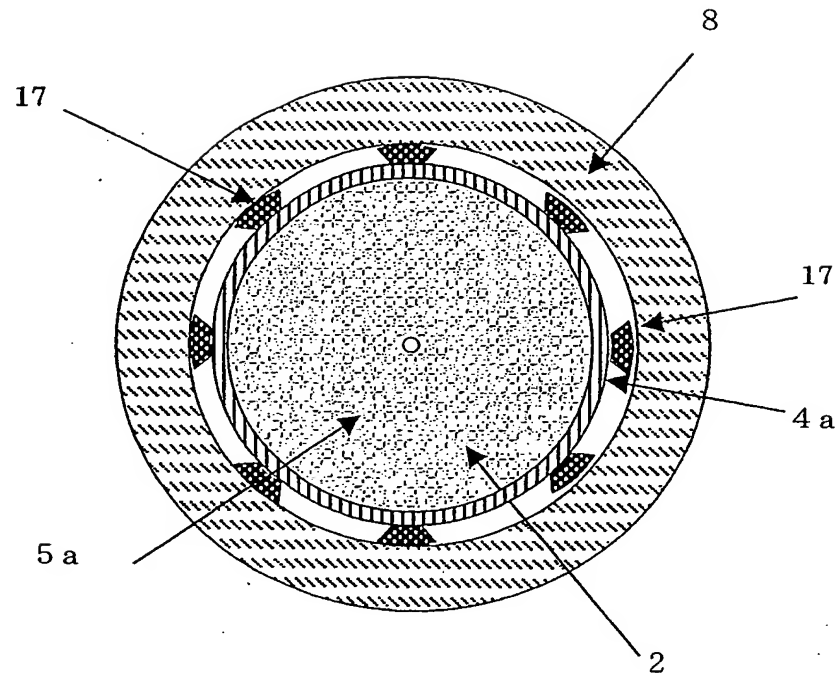


【】

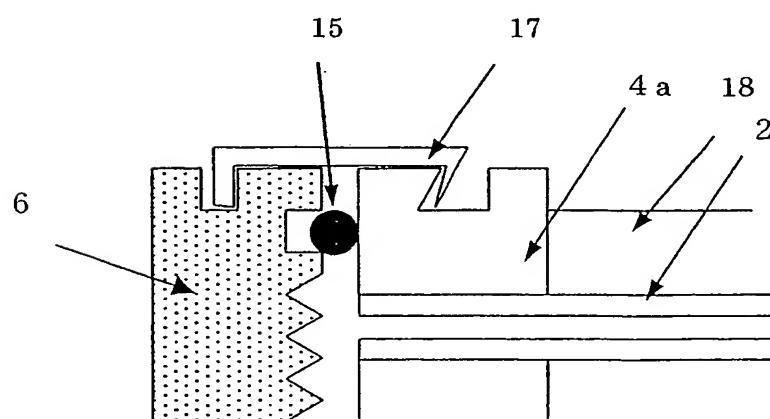
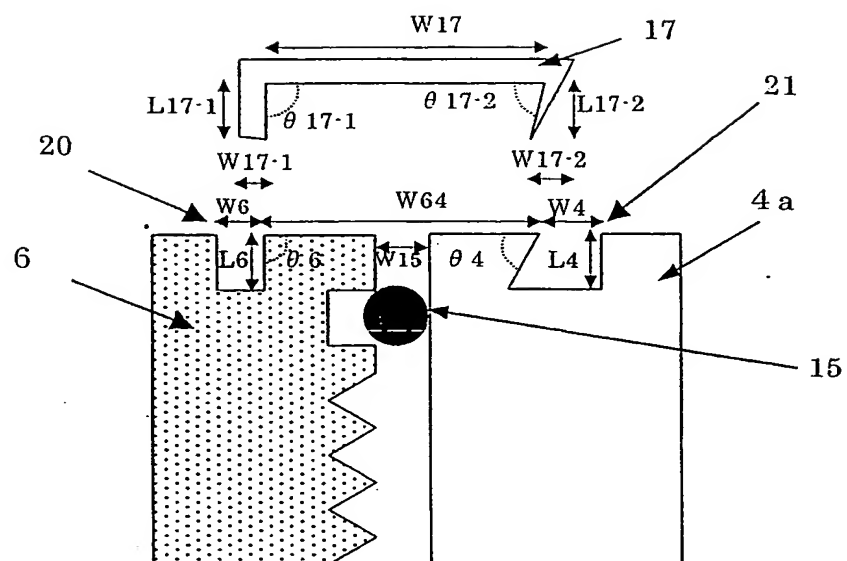
【図2】



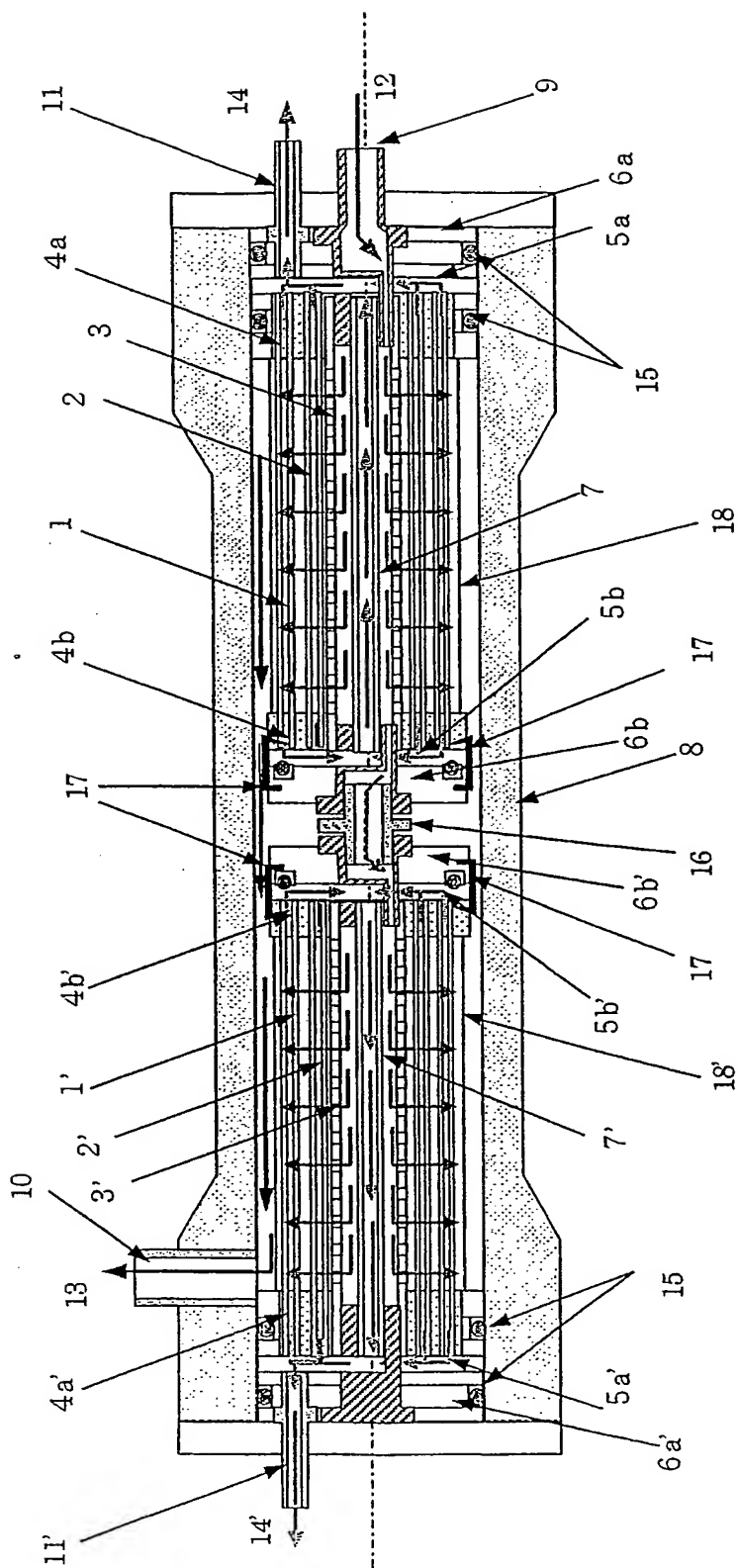
【図 3】

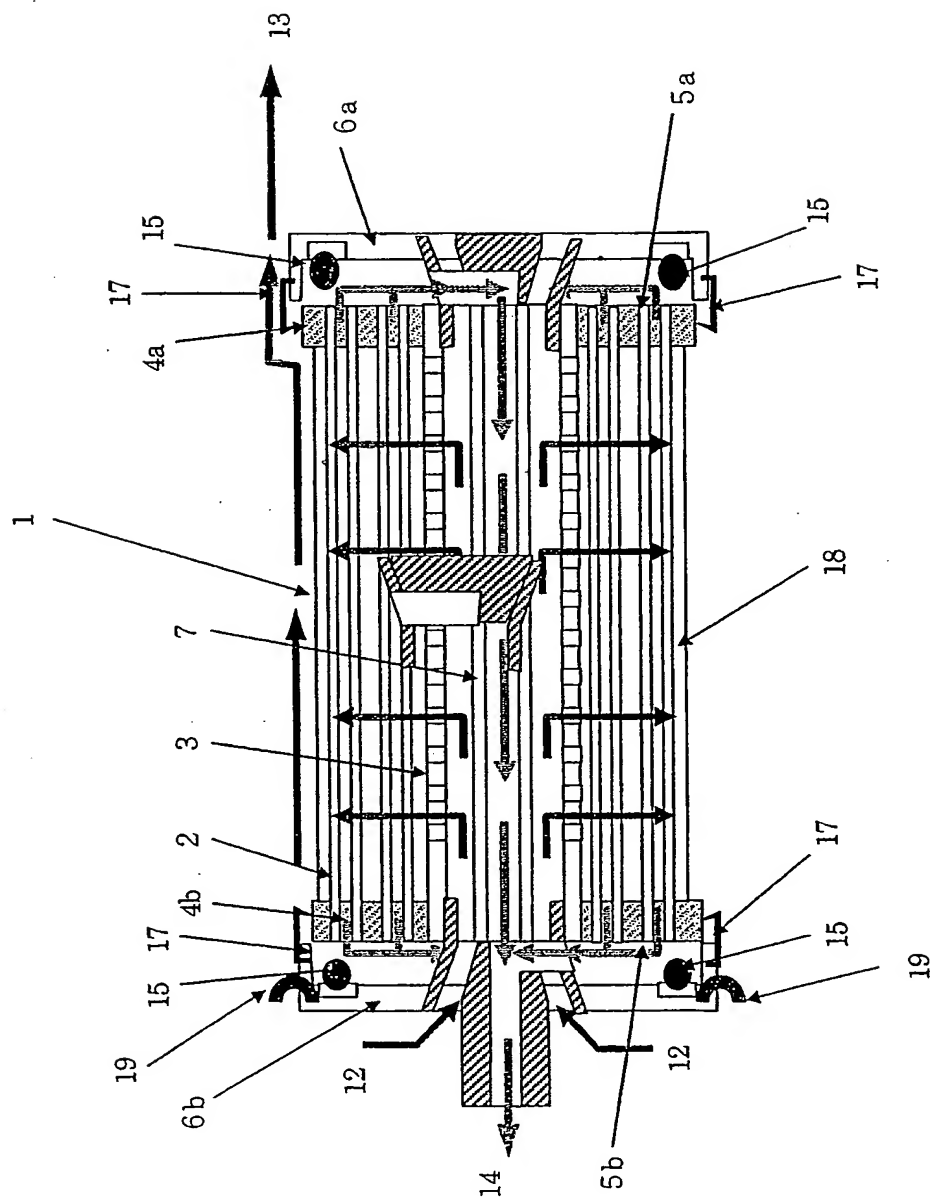


【図 4】

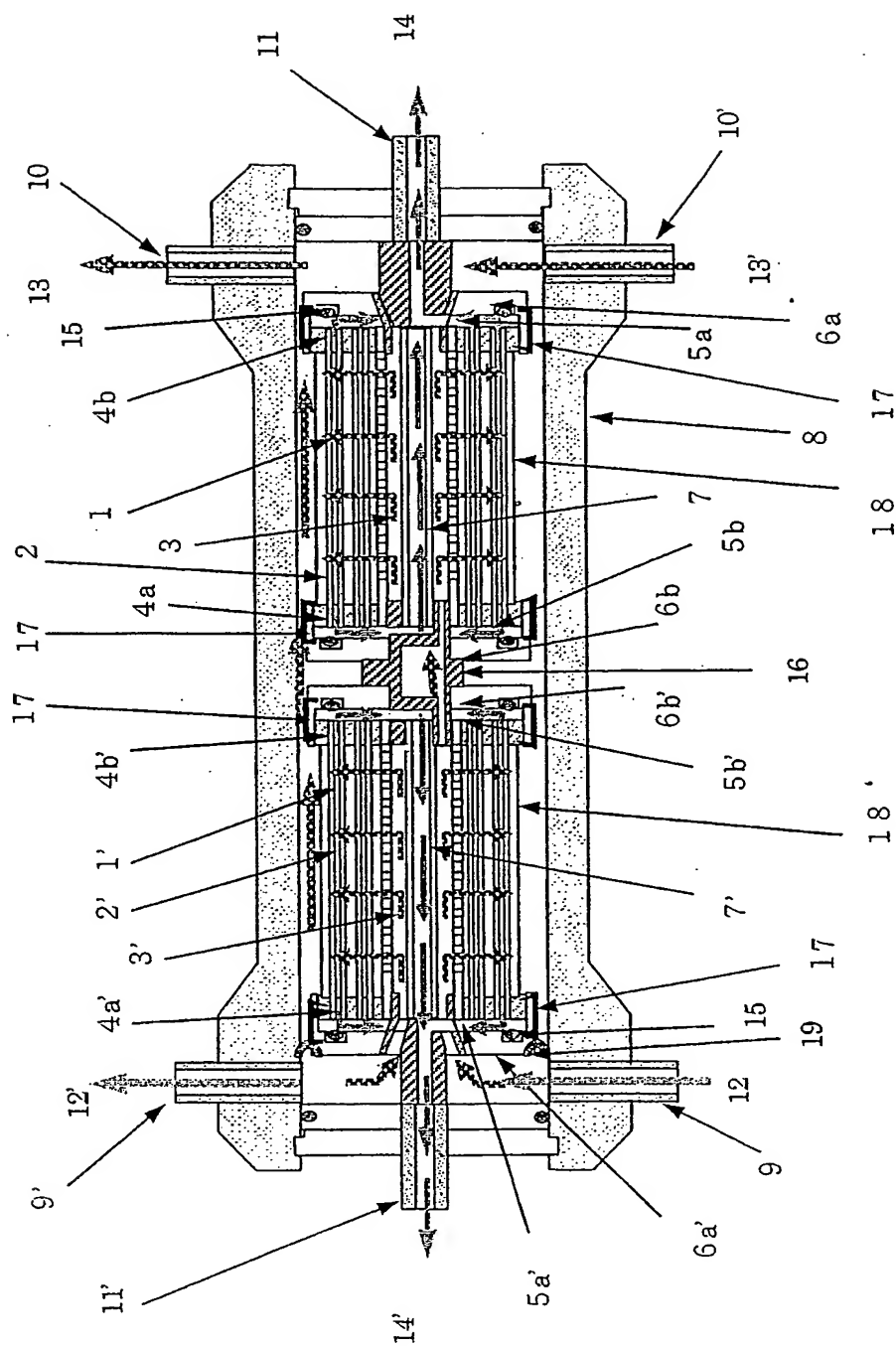


[図5]

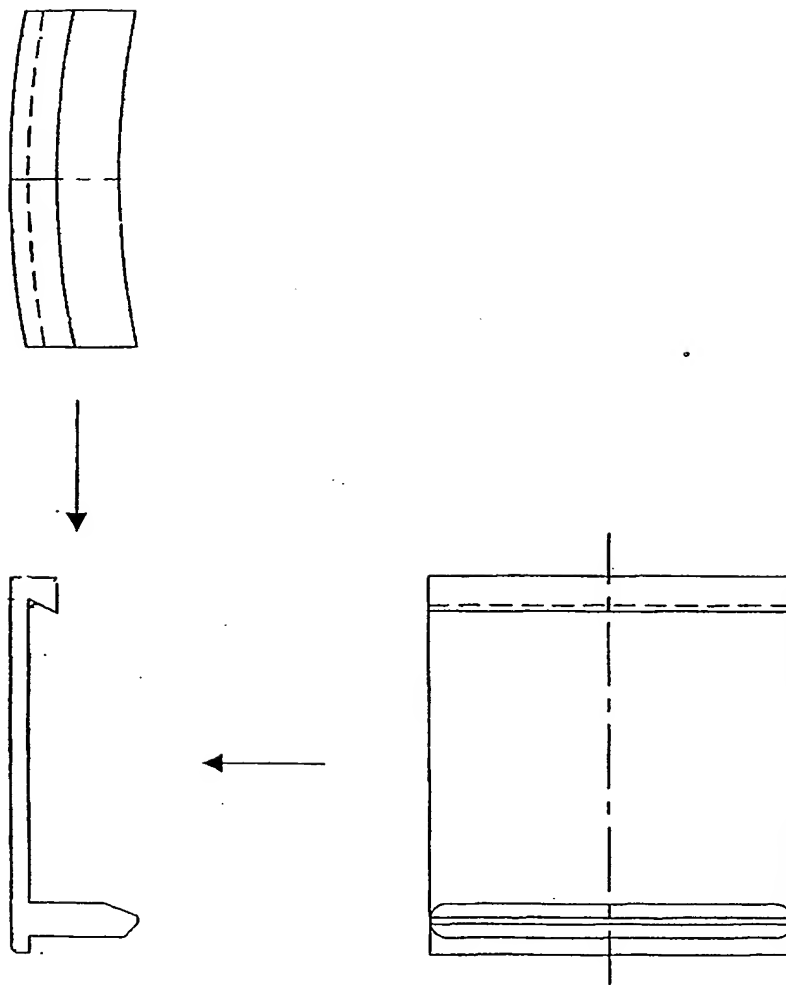




【図6】



[7]



【図8】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/12194

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ B01D63/04, 61/08

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ B01D63/04, 61/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPIL

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 58-163407 A (Nitto Electric Industrial Co., Ltd.), 28 September, 1983 (28.09.83), Page 2, lower left column, line 14 to right column, line 10; drawings (Family: none)	1-6
Y	JP 09-187626 A (NOK Kabushiki Kaisha), 22 July, 1997 (22.07.97), Par. Nos. [0001], [0020]; Fig. 1 (Family: none)	1-6
Y	JP 56-087405 A (Toyobo Co., Ltd.), 16 July, 1981 (16.07.81), Claims (Family: none)	2

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
09 December, 2003 (09.12.03)Date of mailing of the international search report
24 December, 2003 (24.12.03)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/12194

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 1310291 A1 (Asahi Kasei Kabushiki Kaisha), 05 August, 2003 (05.08.03), Par. No. [0061]; Fig. 4 & WO 02/04101 A1	6
A	WO 96/08306 A1 (E.I. DU PONT DE NEMOURS AND CO.), 21 March, 1996 (21.03.96), Figs. 1 to 3 & US 5470469 A & EP 781163 A1 & JP 09-511447 A	1-6
A	JP 60-206415 A (Nippon Genshiryoku Jigyo Kabushiki Kaisha), 18 October, 1985 (18.10.85), Fig. 3 (Family: none)	1-6
A	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 010162/1989 (Laid-open No. 100635/1990) (Nitto Denko Corp.), 19 August, 1990 (19.08.90); Fig. 2 (Family: none)	1-6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B01D63/04, 61/08

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B01D63/04, 61/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996
日本国公開実用新案公報	1971-2003
日本国登録実用新案公報	1994-2003
日本国実用新案登録公報	1996-2003

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPIL

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 58-163407 A (日東電気工業株式会社) 1983. 09. 28 第2頁左下欄第14行-右欄第10行、図 (ファミリーなし)	1-6
Y	JP 09-187626 A (エヌオーケー株式会社) 1997. 07. 22 [0001], [0020], 図1 (ファミリーなし)	1-6
Y	JP 56-087405 A (東洋紡績株式会社) 1981. 07. 16 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	2

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09. 12. 03

国際調査報告の発送日

24.12.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

豊永 茂弘

4D

3030

電話番号 03-3581-1101 内線 3421

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	EP 1310291 A1 (Asahi Kasei Kabushiki Kaisha) 2003. 08. 05 [0061], FIG 4 & WO 02/04101 A1	6
A	WO 96/08306 A1 (E. I. DU PONT DE NEMOURS AND COMPAN Y) 1996. 03. 21 FIG. 1-FIG. 3 & US 5470469 A & EP 781163 A1 & JP 09-511447 A	1-6
A	JP 60-206415 A (日本原子力事業株式会社) 1985. 10. 18 第3図 (ファミリーなし)	1-6
A	日本国実用新案登録出願01-010162 (日本国実用新案登録 出願公開02-100635) の願書に添付した明細書及び図面の 内容を記録したマイクロフィルム (日東電工株式会社) 1990. 08. 19 第2図 (ファミリーなし)	1-6